

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

ATTY.'S DOCKET: KATAGIRI=3

In re Application of: ) Art Unit: 1732  
KATAGIRI et al. ) Examiner:  
Appln. No.: 09/694,677 ) Washington, D.C.  
Filed: October 24, 2000 ) January 9, 2001  
For: THERMOPLASTIC SHAPED-BODY...)

**REQUEST FOR PRIORITY**

Honorable Commissioner of Patents and Trademarks  
Washington, D.C. 20231

Sir:

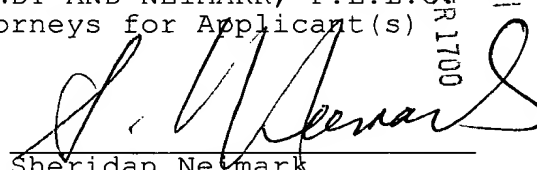
In accordance with the provisions of 37 C.F.R. §1.55 and the requirements of 35 U.S.C. §119, there is filed herewith a certified copy of: **JAPANESE**

Appln. No.: 2000-178424 W/English Translation	Filed: June 14, 2000.
Appln. No.: 2000-079236 W/English Translation	Filed: March 22, 2000.
Appln. No.: 2000-025100 W/English Translation	Filed: February 2, 2000.
Appln. No.: 11-299575 W/English Translation	Filed: October 21, 1999.

It is respectfully requested that applicant be granted the benefit of the priority date of the foreign application. Respectfully submitted,

BROWDY AND NEIMARK, P.L.L.C.  
Attorneys for Applicant(s)

By

  
Sheridan Neimark  
Registration No. 20,520

SN:ct  
Telephone No.: (202) 628-5197  
Facsimile No.: (202) 737-3528

RECEIVED  
APR 30 2001  
TECHNOLOGY CENTER 1700



日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 3月22日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-079236

出 願 人

Applicant (s):

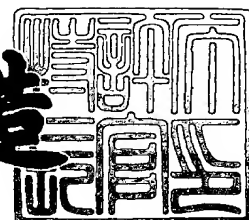
株式会社林原生物化学研究所

RECEIVED  
APR 30 2001  
TECHNOLOGY CENTER 1700

2000年10月27日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3089688

【書類名】 特許願

【整理番号】 10082604

【あて先】 特許庁長官 近藤 隆彦 殿

【国際特許分類】 A23G 3/00  
A23L 7/00  
A61K 9/00  
A61K 47/26  
C07H 3/04

【発明者】

【住所又は居所】 岡山県岡山市吉備津 3 7 7 番地の 4

【氏名】 片桐 直彦

【発明者】

【住所又は居所】 岡山県岡山市四御神 1 番 3 0

【氏名】 久保田 倫夫

【発明者】

【住所又は居所】 岡山県岡山市伊島町 1 丁目 3 番 2 3 号

【氏名】 三宅 俊雄

【特許出願人】

【識別番号】 000155908

【氏名又は名称】 株式会社林原生物化学研究所

【代表者】 林原 健

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 平成11年特許願第299575号

【出願日】 平成11年10月21日

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2000- 25100

【出願日】 平成12年 2月 2日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 035736

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 熱可塑性トレハロース成形物とその製造方法並びに用途

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 熱可塑性トレハロース成形物。

【請求項 2】 トレハロース溶液の付着力低減能を有する物質を含有し水分を約 8. 3 w/w%以下含有しているか、又は、当該付着力低減能を有する物質を含有せずに水分を約 2. 4 w/w%以下含有している請求項 1 記載の熱可塑性トレハロース成形物。

【請求項 3】 流動可能な温度が、品温として約 9 0℃以上の温度である請求項 1 又は 2 記載の熱可塑性トレハロース成形物。

【請求項 4】 トレハロースが非晶質である請求項 1、 2 又は 3 記載の熱可塑性トレハロース成形物。

【請求項 5】 成形物が、短径として約 0. 1 乃至 2 0 m m から選ばれる長さを有し、長径として短径と同等以上の長さを有する請求項 1、 2、 3 又は 4 記載の熱可塑性トレハロース成形物。

【請求項 6】 成形物が、粒、球、半球、楕円球、短棒、短角錘、半円錘、短角錐、立方体、直方体、短管及び繊維から選ばれる形状である請求項 1、 2、 3、 4 又は 5 記載の熱可塑性トレハロース成形物。

【請求項 7】 トレハロース溶液の付着力低減能を有する物質を含有し水分を約 8. 3 w/w%以下含有しているか、又は、当該付着力低減能を有する物質を含有せずに水分を約 2. 4 w/w%以下含有しているトレハロース溶液を成形することを特徴とする熱可塑性トレハロース成形物の製造方法。

【請求項 8】 トレハロース溶液が、トレハロース含水結晶又はトレハロース無水結晶を加熱溶融したものであるか、又はトレハロース水溶液を加熱濃縮したものである請求項 7 記載の熱可塑性トレハロース成形物の製造方法。

【請求項 9】 付着力低減能を有する物質が疎水性及び／又は親水性の有機物質である請求項 7 又は 8 記載の熱可塑性トレハロース成形物の製造方法。

【請求項 1 0】 熱可塑性トレハロース成形物が、無水物換算で、トレハロースを、 6 0 w/w%を越える量含有している請求項 7、 8 又は 9 記載の熱可塑

性トレハロース成形物の製造方法。

【請求項 1 1】 請求項 1 乃至 6 のいずれかに記載の熱可塑性トレハロース成形物、又は請求項 7 乃至 1 0 のいずれかに記載の製造方法で得られた熱可塑性トレハロース成形物を加熱して流動可能とし、これをそのまま成形するか、又は、これを他の物質と共に用いて成形することを特徴とするトレハロース含有成形物の製造方法。

【請求項 1 2】 熱可塑性トレハロース成形物を他の物質に対して、無水物換算で 1. 0 w/w % 以上の量用いることを特徴とする請求項 1 1 記載のトレハロース含有成形物の製造方法。

【請求項 1 3】 他の物質が、飲食品材料、化粧品材料、医薬品材料、農水畜産材料及びプラスチック材料から選ばれる材料である請求項 1 1 又は 1 2 記載のトレハロース含有成形物の製造方法。

【請求項 1 4】 成形する方法が、スタンピング成形、カッティング成形、晶出成形、射出成形、押出成形、吹込成形、板成形、注型成形、加圧成形、圧縮成形、カレンダー成形、積層成形、被覆成形、回転成形、吹付成形、固着成形及び発泡成形から選ばれる請求項 1 1、1 2 又は 1 3 記載のトレハロース含有成形物の製造方法。

【請求項 1 5】 トレハロース含有成形物が、飲食品、化粧品、医薬品、農水畜産用品、除崩性プラスチック、生分解性成形物又は家庭用品として利用される成形物である請求項 1 1、1 2、1 3 又は 1 4 記載のトレハロース含有成形物の製造方法。

【請求項 1 6】 トレハロース水溶液を、加熱濃縮するに際し、トレハロース溶液の付着力低減能を有する物質を共存させ水分を約 8. 3 w/w % 以下にせしめるか、又は当該付着力低減能を有する物質を共存させないで水分を 2. 4 w/w % 以下にせしめることを特徴とするトレハロース溶液の付着力低減方法。

【請求項 1 7】 付着力低減能を有する物質が疎水性及び／又は親水性の有機物質である請求項 1 6 記載の付着力低減方法。

【請求項 1 8】 有機物質が、脂質、炭化水素、糖質、ポリアルコール、乳化剤から選ばれるものである請求項 1 6 又は 1 7 記載の付着力低減方法。

【請求項 1 9】 付着力低減能を有する物質を、無水物換算で、トレハロースに対して 4 0 w / w % 未満の量共存せしめることを特徴とする請求項 1 7、1 8 又は 1 9 記載の付着力低減方法。

【請求項 2 0】 請求項 1 7 乃至 2 0 のいずれかに記載の付着力低減方法で付着力を低減させたトレハロース溶液を成形し、得られる熱可塑性トレハロース成形物。

【請求項 2 1】 流動可能温度が、品温として約 9 0 ℃ 以上の温度である請求項 2 0 記載の熱可塑性トレハロース成形物。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、熱可塑性トレハロース成形物とその製造方法並びに用途に関し、詳細には、熱可塑性トレハロース成形物とこれをトレハロース溶液を用いて成形することを特徴とする当該熱可塑性トレハロース成形物の製造方法並びに当該成形物を加熱して流動可能とし、成形することを特徴とするトレハロース含有成形物の製造方法、加えてトレハロース溶液の付着力低減方法とその用途に関する。

【0 0 0 2】

【従来技術】

トレハロースは、「化学工業」1 9 9 9 年 6 月号 5 7 乃至 6 5 頁の記載にも見られるように、近年、澱粉を原料に大量に生産され、食品工業を中心に広く利用されるようになってきた。しかしながら、トレハロースを成形して利用する方法は限られている。例えば、結晶又は粉末状のトレハロースを賦形剤又は結合剤などと混合し、錠剤に成形して利用するか、又は結晶又は粉末状のトレハロースをこれを越える量の他の糖質と共に水に加熱溶解し、これを煮詰めて型に流し込み、冷却して、キャンディーに成形して利用する程度である。しかも、これらの方法は、比較的特殊な装置、高度な技術を必要としているにもかかわらず、得られる成形物の形状が単調に過ぎる。随意的形状のトレハロース含有成形物、例えば綿状成形物の製造は困難で、市販の結晶又は粉末状トレハロースは、綿菓子製造機にかからず、氷砂糖を用いた場合のように上手く綿状成形物が製造できないの

が実状である。トレハロースを用いて、随意的な形状の成形物を容易に製造する方法が望まれる。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、トレハロースを用いて、随意的な形状の成形物を容易に製造することを課題とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、上記課題を解決するために、トレハロース成形物の製造方法につき、鋭意研究してきた。その結果、トレハロース高含有のガラス質成形物は、他の糖質の場合よりも保存安定性が良好であること、熱可塑性を有していること、耐熱性が良好であること、加熱して流動可能にしたものを随意的な形状に成形することの容易であること、更には、これら性質を利用して繰り返し成形することも容易であることを見出し、本発明を完成した。即ち、本発明は、トレハロース高含有のガラス質成形物が優れた熱可塑性を有し、安定な成形物であることを見いだしたことに基づき、熱可塑性トレハロース成形物を提供し、又、トレハロース溶液の付着力低減能を有する物質を含有し、水分を約 8.3 w/w%（以下、本明細書では、特に断らない限り、w/w%を%と略記する。）以下含有しているトレハロース溶液、又は、付着力低減能を有する物質を含有せずに、水分を約 2.4%以下含有しているトレハロース溶液を用いて成形することを特徴とする当該熱可塑性トレハロース成形物の製造方法を提供し、又、当該熱可塑性トレハロース成形物を加熱して流動可能とし、そのまま随意的な形状に成形するか、又はこれを他の物質と共に用いて随意的な形状に成形することを特徴とするトレハロース含有成形物の製造方法を提供し、更に、トレハロース水溶液を加熱濃縮するに際し、トレハロース溶液の付着力低減能を有する物質を共存させ水分を約 8.3%以下にせしめるか、又は共存せしめないままで水分を約 2.4%以下にせしめることを特徴とするトレハロース溶液の付着力低減方法とこの方法を利用し得られる当該熱可塑性トレハロース成形物を確立して前記課題を解決する。

【0005】



## 【発明の実施の形態】

本発明で使用するトレハロースは、別名 $\alpha$ 、 $\alpha$ -トレハロースであり、その由来は問わない。例えば、特開平 7-246097 号公報に記載される酵母からのトレハロース、特開昭 58-216695 号公報に記載されるマルトースからのホスホリラーゼ法によるトレハロース、特開平 7-170977 号公報、特開平 7-213283 号公報等に記載される澱粉からの酵素糖化法によるトレハロース等各種トレハロースが適宜採用できる。市販の高純度トレハロース含水結晶、高純度トレハロース無水結晶等を使用することも適宜採用できる。例えば、株式会社林原商事が販売している高純度トレハロース含水結晶製品（登録商標『トレハ』）を使用することも有利に実施できる。

## 【0006】

また、本発明の熱可塑性トレハロース成形物は、室内の温度、湿度環境条件下で保存安定性が良好で、経日変化を起こしにくく、しかも、これを加熱して溶融させ流動可能とし、随意の形状に容易に成形でき、成形、溶融を二度以上繰り返してもその性質に変化がなく、成形物の再生も容易に行えるものである。

## 【0007】

本発明の熱可塑性トレハロース成形物は、トレハロース溶液の付着力低減能を有する物質を含有し水分を約 8.3%以下、望ましくは約 4.4%以下含有しているか、又は、当該付着力低減能を有する物質を含有せずに水分を約 2.4%以下、望ましくは 2.0%以下を含有する成形物である。これらの成形物を加熱し、可塑化してくる温度を調べたところ、品温約 70 乃至 90℃にすると柔らかくなり、品温約 90℃以上、高いものでも約 100 乃至 120℃にすると流動可能となることが判明した。その製造方法としては、適宜の方法が選択できる。例えば、トレハロースの含水結晶又は無水結晶を、そのまま又は適量の加湿をして、加熱、溶融、望ましくは品温としてできるだけ高温、好ましくは、160℃を越える温度、更に望ましくは約 165 乃至 230℃、更に望ましくは、約 170 乃至 220℃で加熱溶融させ、これをガラス質状態に成形する方法で成形すればよい。また、例えば、前記の各種酵素反応により調製したトレハロース水溶液や、これを水素添加して調製したトレハロース水溶液、更にはトレハロース含水結晶

を水に溶解したトレハロース水溶液を、望ましくは水分 3 0 % 以上、更に望ましくは水分 3 0 % 以上 5 0 % 未満、換算すれば、トレハロースを濃度 7 0 % 未満、更に望ましくは約 5 0 % 以上 7 0 % 未満含有するトレハロース水溶液を、常圧又は減圧下で加熱濃縮して高濃度溶液とし、これをガラス質状態に成形する方法で製造すればよい。

## 【 0 0 0 8 】

このトレハロース水溶液を加熱濃縮する場合には、その水分と溶液温度とは、密接に関係しており、例えば、常圧の場合、水分 1 5 . 3 % で温度 1 1 5 ℃ であり、以下、同様に 9 . 9 % で 1 2 5 ℃、5 . 2 % で 1 4 5 ℃、2 . 4 % で 1 6 5 ℃、1 . 1 % で 1 8 5 ℃ の関係にある。この関係を求める過程で、加熱濃縮時の溶液の水分（溶液の温度）の違いによって溶液の付着力が大きく変動するという意外な現象を見出した。即ち、加熱濃縮して、溶液の水分が約 1 0 % を下回ると付着力が高まり、とりわけ、水分約 8 . 3 % 以下では付着力が著しく高まり、更に濃縮して水分約 4 . 4 乃至 3 . 0 % で付着力はピークに達し流動性が弱まり、更に加熱濃縮を続け、水分 3 % 未満になると逆に付着力が低下し、更に水分約 2 . 4 % 以下、望ましくは約 2 . 0 % 以下になるとその付着力、流動性も成形時の作業性に支障がない程に改善されることが判明した。

## 【 0 0 0 9 】

この異常に高まった付着力を低減させ作業性を改善することを目的に鋭意検討したところ、付着力低減能を有する物質の共存が好適であり、これにより、高純度トレハロース溶液の付着力が大幅に低減され、加熱濃縮時の泡立ちが低くなり、作業性が向上し、成形物の製造も容易となることが判明した。

## 【 0 0 1 0 】

付着力低減能を有する物質としては、前記トレハロース溶液の付着力が低減できる物質であればよく、例えば、脂質、炭化水素などの疎水性物質や、糖質、ポリアルコールなどの親水性物質、更には、疎水性及び親水性の両性質を有している乳化剤などから選ばれる有機物質が好適であり、その使用方法は、無水物換算で、トレハロースに対して 4 0 % 未満、望ましくは 3 0 % 未満の量を共存させるのが好適である。

## 【 0 0 1 1 】

脂質としては、油脂、脂肪酸など、炭化水素としては、約 1 0 0 乃至 2 3 0 °C で液状を示す、例えば、アルカン、アルケン、複素環化合物など、糖質としては、単糖類、トレハロース以外のオリゴ糖、単糖アルコール、二糖アルコールなど、ポリアルコールとしては、グリセリン、ジエチレングリコール、プロピレングリコールなど、乳化剤としては、蔗糖脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル、レシチンなどから 1 種又は 2 種以上のものが適宜選ばれる。

## 【 0 0 1 2 】

以上述べてきたように、トレハロース溶液は、望ましくは、前記の付着力低減能を有する物質を共存させる付着力低減方法を採用して、所定の水分、望ましくは水分約 8 . 3 % 以下に濃縮し、これをガラス質状態に成形するか、又は、当該付着力低減能を有する物質を共存させないで、望ましくは水分約 2 . 4 % 以下に濃縮し、これをガラス質状態に成形して当該熱可塑性トレハロース成形物を製造すればよい。成形方法としては、公知の各種の方法、例えば、スタンピング成形、カッティング成形、大気中成形、水中又は油中成形、押出成形、加圧成形、とりわけ二軸式押出成形などが有利に実施できる。

## 【 0 0 1 3 】

このようにして得られる熱可塑性トレハロース成形物は、その良好な保存安定性、熱可塑性を保つ上で、できるだけトレハロース含量の高いものが望ましく、通常、無水物換算でトレハロースを 6 0 % を越える量含有するのが好適であり、望ましくは約 7 0 % 以上、更に望ましくは約 8 0 % 以上、更に望ましくは 9 0 % 以上含有しているものが好適である。

## 【 0 0 1 4 】

熱可塑性トレハロース成形物の形状としては、通常、これを原料とし、加熱して流動可能とし随意の形状に成形する際に、公知の各種成形機又は成形装置に容易に適用できるものが望ましく、これら成形機又は成形装置を利用して、容易に加熱し、必要に応じて加圧又は減圧して、容易に溶融させ流動可能とし、随意の形状に成形できるものが好適である。

## 【0015】

この具体例としては、通常、短径として約0.1乃至20mm、望ましくは約2乃至15mmから選ばれる長さを有し、長径として短径と同等以上の長さを有するものが好適である。形状としては、粒、球、半球、楕円球、短棒、短角錐、半円錐、短角錐、立方体、直方体、短管、繊維などが有利に利用できる。一般的には、ペレットと称される形状が好適である。

## 【0016】

このようにして得られた熱可塑性トレハロース成形物は、通常、トレハロース溶液の付着力低減能を有する物質を含有し水分を約8.3%以下、望ましくは約4.4%以下含有しているか、又は当該付着力低減能を有する物質を含有せずに、水分を約2.4%以下、望ましくは約2.0%以下含有しており、併せてトレハロースを無水物換算で60%を越える量、望ましくは約70%以上を含有するトレハロース成形物であって、しかも、トレハロースが非晶質で透明乃至半透明で、耐湿性、耐熱性、耐酸性、耐アルカリ性、保存安定性に優れ、取扱い容易である。当該熱可塑性トレハロース成形物の用途としては、例えば、これを少量の熱水に溶解して、トレハロース高含有ペースト状物を調製することや、更にこのペースト状物を他の機能性物質や有効成分と混合して用いることや、更にはこの混合物にトレハロースの結晶核などを共存させ、トレハロースを起晶させて粉末化を容易にする粉末化基剤などとして用いたりすることもできる。

## 【0017】

しかし、最も重要な用途は、熱可塑性を利用する用途である。即ち、熱可塑性トレハロース成形物は、これを再び加熱して溶融させ流動可能とし、これをそのまま随意の形状に成形してもよいし、又、これを他の物質と共に用いて、例えば、これを他の物質に被覆、混合、固着、挿入、封入させるなどして、随意の形状に成形してトレハロース含有成形物を得ることも有利に実施できる。

## 【0018】

加熱する条件としては、付着力低減能を有する物質の種類や共存の程度によって異なるものの、熱可塑性トレハロース成形物が溶融して柔らかくなり、望ましくは流れる状態、換言すれば、流動可能となり、随意の形状に成形できればよく

、柔らかくなる温度としては、通常、品温約 7 0 乃至 9 0℃、流動可能温度としては、品温約 9 0℃以上、望ましくは約 1 0 0 乃至 1 2 0℃又はこれ以上に加熱すればよい。具体的には、流動可能温度は、通常、当該熱可塑性トレハロース成形物の水分が比較的高い約 8. 3 %以下で 2. 4 %を越える場合、比較的低く、通常、約 9 0℃以上、望ましくは約 1 0 0 乃至 1 6 0℃から選ばれ、その水分が比較的低い約 2. 4 %以下の場合、比較的高く、通常、約 1 0 0℃以上、望ましくは約 1 1 0 乃至 2 3 0℃から選ばれる温度に加熱すればよい。

## 【 0 0 1 9 】

他の物質と共に用いて成形する際には、例えば、当該熱可塑性トレハロース成形物を、予め他の物質と混合し、次いで、加熱して、流動可能として随意の形状に成形することも、又、当該熱可塑性トレハロース成形物だけを予め加熱して流動可能とし、次いで他の物質と混合して成形することも適宜選択できる。必要ならば、加湿するか、又は少量の水を加えて、熔融温度を下げたり、混和を促進したりすることもできる。

## 【 0 0 2 0 】

他の物質としては、共に用いて随意の安定な形状に成形できるものであればいずれも有利に用いることができる。即ち、化学工業分野をはじめとする本発明の成形物が利用される個々の分野、例えば、飲食品分野、化粧品分野、医薬品分野、農水畜産分野、プラスチック工業、家庭用品などの分野において通常用いられる添加物を含む材料ないしは素材であって、共に用いて安定な形状に成形できるものであればいずれでもよい。詳細には、上記の分野から選ばれる 1 又は 2 以上の分野で通常用いられる、例えば、甘味料、フィリング剤、着色剤、発色剤、発酵調整剤、着香料、香料、芳香剤、強化剤、膨張剤、保存料、殺菌料、酸化防止剤、抗酸化剤、漂白剤、糊料、安定剤、乳化剤、軟化剤、品質改良剤、調味料、香辛料、光沢剤、苦味料、酸味料、食品製造用剤、酵素剤、ガムベース、界面活性剤、可塑剤、滑沢剤、可溶化剤、還元剤、緩衝剤、基材、吸着剤、矯味剤、結合剤、懸濁剤、コーティング剤、潤滑剤、潤滑調整剤、充填剤、消泡剤、清涼化剤、接着剤、増強剤、咀嚼剤、糖衣剤、等張化剤、粘着剤、粘着増強剤、粘稠剤、粘稠化剤、発炎抑制剤、発熱剤、発泡剤、皮膚保護剤、賦形剤、分散剤、pH

調節剤、崩壊剤、崩壊補助剤、防錆剤、防湿剤、防腐剤、防黴剤、保存剤、無痛化剤、ビタミン剤、抗生物質、化学療法剤、アレルギー用剤、抗ヒスタミン剤、鎮痛剤、鎮痒剤、収斂剤、消炎剤、ステロイド剤、ホルモン剤、強心剤、歯科・口腔用剤、止血剤、紫外線吸収剤、除草剤、熱可塑性樹脂、合成樹脂、晶出防止剤、劣化防止剤、老化防止剤、焼け防止剤、樹脂硬化剤、凝固剤、起泡剤、気泡安定剤、帯電防止剤、加硫剤などから目的に応じて適宜選択することができる。例えば、飲食品分野でより具体的に述べれば、例えば、澱粉、アミロース、アミロペクチン、 $\alpha$ 化澱粉、デキストリン、難消化性デキストリン、澱粉誘導体、プルラン、ペクチン、アルギン酸、多糖類、食物繊維、単糖類、オリゴ糖、機能性オリゴ糖、糖アルコールなどの糖質、カゼイン、ゼラチン、コラーゲン、アルブミン、ミオシンなどの蛋白質、ポリペプチド、オリゴペプチド、アミノ酸、油脂、脂肪酸、ミネラルなどが挙げられる。

#### 【0021】

このようにして他の物質と共に用いて成形し得られるトレハロース含有成形物に含まれるトレハロースは、通常、前記ビタミン、脂質、蛋白質、薬効物質、生理活性物質などの比較的不安定な機能性物質や有効成分の安定性を向上することから、そのトレハロース含量が高い程望ましく、一般的には、表面を被覆する成形物の場合にその含量が比較的少なく、均一に混合し全体を固着成形させるような場合にはその含量が比較的多い。随意の形状に成形する必要があることから、通常、熱可塑性トレハロース成形物を他の物質に対して、無水物換算で、約1.0%以上、望ましくは、約2.0%以上、より望ましくは約5.0%以上、更に望ましくは約10%以上が好適である。成形物の形状としては、粒、棒、板、シート、フィルム、管、積層、スポンジなどの点、線、面、立体の各種形状の成形物が適宜選ばれる。

#### 【0022】

これら成形物を成形する方法は、目的とする形状によって、適宜の方法が採用できる。公知の成形方法、例えば、スタンピング成形、カッティング成形、射出成形、押出成形、吹込成形、板成形、注型成形、圧縮成形、加圧成形、カレンダー成形、積層成形、被膜成形、回転成形、吹付成形、固着成形、発泡成形などがある。

利に実施できる。

【 0 0 2 3 】

このようにして、他の形状に変換して得られるトレハロース含有成形物は、共に用いる他の物質やこれに含まれる機能性物質や有効成分などによって、例えば、飲食品、化粧品、医薬品、農水畜産用品、徐崩性プラスチック、生分解性成形物、家庭用品などとして利用される成形物に好適である。

【 0 0 2 4 】

以下、本発明を実験で説明する。

【 0 0 2 5 】

【実験 1】

〈糖質溶液の煮詰温度（水分）による溶液の付着性とその成形物の保存安定性に与える影響〉

糖質として、非還元性の糖質、即ちマルチトール無水結晶又はトレハロース 2 含水結晶を用意し、手鍋にこれら糖質のいずれかをとり、これに水を加えて加熱し、それぞれ濃度 5 0 % の溶液を調製し、これら糖質溶液の加熱を続け沸騰させ、糖質溶液を煮詰めた。糖質溶液が、1 2 0 ℃、1 3 0 ℃、1 4 0 ℃、1 5 0 ℃、1 6 0 ℃、1 7 0 ℃、1 8 0 ℃、1 9 0 ℃の各温度に達した時、糖質溶液にほぼ垂直に、直径 4 m m のガラス棒を液面から 3 c m の深さまで差込み、そのまま約 3 秒間保持した後、緩やかに引き上げた。ガラス棒に付着した糖質溶液の重量は、糖質溶液が付着したガラス棒の重量から、ガラス棒のみの重量を差し引くことによって、算出した。また、それぞれの煮詰め液を小型成形器（デポジッター）にサンプリングし、室温まで冷却させ、形状が、長さ 2 0 m m 、幅 1 5 m m 、厚さ 5 m m の成形物の試料を得た。この製造当日の試料を用いて、水分を測定した。水分含量は、常法により、珪藻土法（温度 8 0 ℃、5 0 m m H g 以下の減圧下で一晩乾燥）で測定した。

【 0 0 2 6 】

また、同じ試料をシャーレに入れて、相対湿度約 7 0 % で、温度約 2 5 ℃の室内に 1 0 日間放置後の固着性の有無を観察した。

【 0 0 2 7 】

固着性は、試料が吸湿し、シャーレに固着する程度を調べ、有、無の２段階に分けて示し、保存安定性の目安とした。結果は、表１に示した。

【 0 0 2 8 】

【表 1】

糖質	測定項目	煮詰温度(常圧, °C)									
		120	130	140	150	155	160	165	170	180	190
トレハロース	付着量(g)	0.230	0.569	0.890	1.250	1.474	1.726	1.580	0.915	0.761	0.579
	水分(%)	12.1	8.3	6.1	4.4	3.6	3.0	2.4	2.0	1.3	0.9
	固着性	無	無	無	無	無	無	無	無	無	無
マルチトール	付着量(g)	0.200	0.317	0.338	0.369	0.355	0.335	0.345	0.313	0.294	0.257
	水分(%)	9.1	5.5	4.1	3.2	2.7	2.5	2.1	1.9	1.4	0.9
	固着性	有	有	有	有	有	有	有	有	有	有

【 0 0 2 9 】

表１から明らかなように、トレハロースの場合、意外にも温度１２０℃（溶液の水分約１２％）から１６０℃（溶液の水分約３．０％）まで、ガラス棒に付着するトレハロース溶液の重量は著しく増加し、この温度を越えると、水分が減少する、換言すれば濃度が高まるにもかかわらず、温度１９０℃まで付着量が減少してくることがわかった。即ち、トレハロース溶液の付着力は、温度１３０℃（溶液の水分約８．３％）以上で著しく高まり、温度約１５０℃乃至１６０℃（溶液の水分約４．４乃至３．０％）でピークに達し、１６０℃を越える（溶液の水分約３．０％未満になる）とその付着力が漸次低下することが判明した。

【 0 0 3 0 】

なお、対照のマルチトールの場合、付着量の僅かな増加と減少（温度１２０℃から１５０℃までの増加と、その後の温度１９０℃までの減少）が観察されたが、その増減の程度は、トレハロースの場合と比べ、微少であることが判明した。以上のことから、トレハロース溶液を煮詰める際、温度１６０℃までは急激に付着力が上昇し、成形時の作業性に悪影響を及ぼすので、これを改善する必要のあることが判明した。一方、このトレハロース溶液を温度１６５℃以上（溶液の水



分約 2. 4 % 以下) の高温に煮詰めると付着力が低下し、流動性が著しく改善され、トレハロース溶液を取扱う際の作業性が極めて容易になることも判明した。トレハロースの場合はマルチトールとは違って、成形物は、相対湿度 7 0 % の室温下に保存しても経時変化が少なく、耐湿性に優れ、保存安定性良好であることが判明した。

## 【 0 0 3 1 】

## 【実験 2】

## 〈付着力の低減方法〉

トレハロース 2 含水結晶 5 5 0 重量部をステンレス製の手鍋に入れ、そこへ付着力低減能を有する物質として、サフラワー油 5 0 重量部、サラダ油 5 0 重量部、マルチトール無水結晶 1 5 0 重量部、又は、ラクチトール 1 含水結晶 1 5 8 重量部から選ばれるいずれか 1 種を加え、更に水 4 5 0 重量部を加えた後、加熱しながら糖質を完全に溶解させた。更に、加熱を続け沸騰させ、糖質溶液を煮詰めた。糖質溶液が、1 2 0 ℃、1 3 0 ℃、1 4 0 ℃、1 5 0 ℃、1 6 0 ℃、1 7 0 ℃、1 8 0 ℃の各温度に達した時、実験 1 と同様の方法で、ガラス棒に付着する糖質溶液の重量を測定した。また、それぞれの煮詰め液を用いて、実験 1 と同様の方法に従い、成形物を製造し、その製造当日の材料を用いて水分を測定した。結果は、表 2 に示した。なお、糖質溶液中のトレハロース含量は、無水物換算で算出し、表 2 に併せて示した。

## 【 0 0 3 2 】

【表 2】

糖 質	共存物質 トレハロース含量 (%, 無水物換算)	測定項目	煮詰温度 (常圧, °C)						
			120	130	140	150	160	170	180
ト レ ハ ロ ー ス	無 (100%)	付着量(g)	0.230	0.569	0.890	1.250	1.726	0.915	0.761
		水分(%)	12.1	8.3	6.1	4.4	3.0	2.0	1.3
	サフラワー油 (約91%)	付着量(g)	0.150	0.194	0.225	0.256	0.257	0.277	0.278
		水分(%)	12.0	8.2	6.1	4.4	3.0	2.0	1.3
	サラダ油 (約91%)	付着量(g)	0.195	0.499	0.512	0.596	0.538	0.481	0.428
		水分(%)	12.1	8.3	6.1	4.3	3.0	2.0	1.3
	マルチトール (約77%)	付着量(g)	0.230	0.538	0.861	0.987	0.786	0.607	0.570
		水分(%)	11.4	7.8	5.7	4.2	2.9	2.0	1.3
	ラクチトール (約77%)	付着量(g)	0.265	0.466	0.773	0.862	0.919	0.893	0.574
		水分(%)	11.5	7.7	5.7	4.1	2.9	2.0	1.3

## 【 0 0 3 3 】

表 2 から明らかなように、トレハロース単独の場合の温度 1 2 0 °C から 1 6 0 °C までの付着力の増加、中でも温度 1 3 0 °C (溶液の水分約 8 . 3 %) から 1 6 0 °C (溶液の水分約 3 . 0 %) までの急激な付着力の増加は、サフラワー油、サラダ油、マルチトール、ラクチトール共存下のいずれの場合も、著しく抑制され、その付着力が激減することが判明した。とりわけ、温度約 1 5 0 °C (溶液の水分約 4 . 4 %) 乃至 1 6 0 °C (水分約 3 . 0 %) における付着力のピークは、いずれの場合も顕著に低減し、その付着力が激減することが判明した。

## 【 0 0 3 4 】

更に、温度 1 6 0 °C を越す高温での付着力も、これら付着力低減能を有する物質の共存下では、トレハロース単独の場合と比べ、その付着力はいずれも低いことが判明した。

## 【 0 0 3 5 】

以上のことから、トレハロース溶液を煮詰め中に認められた温度 1 3 0 °C (溶液の水分約 8 . 3 %) から 1 6 0 °C (溶液の水分約 3 . 0 %) までの急激な付着力の上昇は、サフラワー油、サラダ油などの油脂、マルチトール、ラクチトールなどの糖質など付着力低減能を有する物質を煮詰の際に共存させることにより、著しく抑制され、とりわけ、温度約 1 5 0 °C (溶液の水分約 4 . 4 %) 乃至 1 6 0 °C (溶液も水分約 3 . 0 %) での付着力のピークは、顕著に低減し、更に、温

度 1 6 0℃を越す高温煮詰においても、これら物質がトレハロース溶液の付着力を一層低下させ、流動性を著しく改善することがわかり、熱可塑性トレハロース成形物の成形時の作業性を顕著に改善できることが判明した。

#### 【0 0 3 6】

以下、本発明の熱可塑性トレハロース成形物を実施例 A で、その用途例としてトレハロース含有成形物を実施例 B で説明する。

#### 【0 0 3 7】

##### 【実施例 A - 1 短棒状成形物】

高純度トレハロース含水結晶製品（株式会社林原商事販売、登録商標『トレハ』）1 1 0 重量部を溶解タンクにとり、水 9 0 重量部を加えて加熱溶解し、これを加熱濃縮し、溶液温度約 1 9 0℃（水分約 0. 9 %）まで煮詰めて溶液の付着力を低減させた後、これを押出成形機にかけて、成形し、室温まで放冷して直径約 2 m m、長さ約 4 m m の短棒状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0℃に再加熱して流動可能とし、随意的な他の形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用い、随意的な形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、このペーストを非晶質のままで利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

#### 【0 0 3 8】

##### 【実施例 A - 2 楕円球状成形物】

高純度トレハロース含水結晶製品を実施例 A - 1 と同様に加熱溶解し、これを加熱濃縮し、付着力が高まり始める液温が 1 1 0℃を越える付近で、無水物換算で、トレハロースに対し約 5 % のオリーブ油を加え、溶液の付着力を低減させて加熱濃縮を続け、溶液温度約 1 7 0℃（水分約 2. 0 %）まで煮詰め、これをスタンピング成形機にかけて、長さ約 1 5 m m、楕円球状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室

内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0℃に再加熱して流動可能とし、随意的な他の形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用いて、随意的な形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、ペーストを非晶質のままでも利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

## 【 0 0 3 9 】

## 【実施例 A - 3 短四角柱状成形物】

高純度トレハロース含水結晶製品を実施例 A - 1 と同様に加熱溶解し、これを加熱濃縮し、付着力が高まり始める液温が 1 1 0℃を越える付近で、無水物換算でトレハロースに対して約 3 % のプロピレングリコールを加え、溶液の付着力を低減させて加熱濃縮を続け、溶液温度約 1 6 5℃（水分約 2 . 4 %）まで煮詰め、これをカッティング成形機にかけて、一辺が約 5 mm、長さ約 1 0 mm の短四角柱状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0℃以上に再加熱して流動可能とし、随意的な他の形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用いて、随意的な形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、このペーストを非晶質のままでも利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

## 【 0 0 4 0 】

## 【実施例 A - 4 半球状成形物】

特開平 8 - 7 3 4 8 2 号公報に開示される方法に従って、リゾビウム・スピーシーズ M - 1 1 ( F E R M B P - 4 1 3 0 ) の変異株をファーマンターで栄養培地に約 7 0 時間培養した。培養後、S F 膜を用いて除菌濾過し、約 1 0 0 l の培養濾液を回収し、更に、その濾液を U F 膜濃縮し、非還元性糖質生成酵素（約 4 1 0 単位 / m l ）とトレハロース遊離酵素（約 4 9 0 単位 / m l ）とを含む濃

縮酵素液約 5 l を回収した。とうもろこし澱粉を濃度約 3 3 % の澱粉乳とし、これに  $\alpha$ -アミラーゼを作用させて D E 約 4 の液化溶液を得、次いで、前記方法で調製した非還元性糖質生成酵素とトレハロース遊離酵素とを含む濃縮酵素液を澱粉グラム当たり 0. 0 2 m l、イソアミラーゼを澱粉グラム当たり 5 0 0 単位及びシクロマルトデキストリン・グルカノトランスフェラーゼを澱粉グラム当たり 5 単位加え、p H 6. 2、温度 4 0 °C で 4 8 時間反応させた。本反応液を加熱失活し、次いで、グルコアミラーゼを基質グラム当たり 1 0 単位加え、p H 5. 0、温度 5 0 °C で 1 0 時間反応させた。本反応液には、固形物当たりトレハロースを 8 5. 6 % 含有していた。本反応液を加熱失活し、常法に従って、脱色、脱塩して精製し、濃縮して濃度 4 5 % のシラップを得た。本トレハロース高含有低還元性糖質シラップを、常法に従って、水素添加し、脱色、脱塩して精製し、濃縮して、無水物換算でトレハロースを約 8 5 %、残りは主としてソルビトールを含有するシラップを得た。これを加熱濃縮し、溶液温度約 1 8 0 °C（水分約 1. 3 %）まで煮詰めて溶液の付着力を低減させ、これを細管を通してサラダ油中に滴下して冷却固化させ、底面直径約 8 m m の半球状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0 °C に再加熱して流動可能とし、随意的な形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用いて、随意的な形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、ペーストを非晶質のままに利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

## 【 0 0 4 1 】

## 【実施例 A - 5 繊維状成形物】

トレハロース含水結晶を電気炉で約 2 0 0 乃至 2 1 0 °C（水分約 0. 5 % 以下）に加熱し、溶融させ、得られる溶液を、この電気炉の下部に設けた取り出し口から流出させつつ、これに空気を吹き付けて太さ約 0. 1 乃至 0. 2 m m の繊維状物とし、これを更に破碎して長さ約 2 0 m m 以下の短繊維状物を得た。本品は

、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0℃に再加熱して流動可能とし、随意的な形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用いて、随意的な形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、ペーストを非晶質のままでも利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

#### 【0 0 4 2】

##### 【実施例 A - 6 短棒状成形物】

実施例 A - 3 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物を、更に約 1 2 0℃に加熱し押出成形機にかけて、直径約 2 m m、長さ約 4 m m の短棒状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0℃に再加熱して流動可能とし、随意的な形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用いて、随意的な形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、このペーストを非晶質のままでも利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

#### 【0 0 4 3】

##### 【実施例 A - 7 楕円球状成形物】

高純度トレハロース含水結晶製品 1 0 0 重量部及び高純度マルチトール無水結晶製品（株式会社林原商事販売、登録商標「マビット」）1 0 重量部を溶解タンクにとり、水 9 0 重量部を加えて加熱溶解し、これに乳化剤（蔗糖ステアリン酸エステル）0 . 2 重量部を加えて加熱濃縮し、溶液温度 1 5 0℃（水分約 4 . 3 %）まで煮詰め、これをスタンピング成形機にかけて、長さ約 1 5 m m、楕円球状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 9 0 乃至 1 6 0℃に再加熱して流動可能とし、随意的な他の

形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用いて、随意的な形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、このペーストを非晶質のままで利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

## 【 0 0 4 4 】

## 【実施例 A - 8 短棒状成形物】

高純度トレハロース含水結晶製品 9 5 重量部及びパラチニット 1 8 重量部を溶解タンクにとり、水 6 3 重量部を加えて加熱溶解し、これを濃縮器に入れ、まず常圧下で 1 2 5℃まで煮詰め、次いで減圧下でこの温度を維持しつつ加熱濃縮し、水分約 1 . 0 %まで煮詰め、これを、実施例 A - 1 と同様に押出成形機にかけて成形し、室温まで放冷して、直径約 2 m m、長さ約 4 m mの短棒状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0℃に再加熱して流動可能とし、随意的な他の形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用い、随意的な形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、このペーストを非晶質のままで利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

## 【 0 0 4 5 】

## 【実施例 A - 9 短棒状成形物】

高純度トレハロース含水結晶製品 8 0 重量部及び高純度マルチトール無水結晶製品 2 0 重量部を混合し粉末化した後、これをこの粉末重量の約 2 0 倍量のサラダ油（約 1 8 0℃）に入れ、粉末を加熱して溶融して水分約 1 . 3 %とし、これを取り出して、カッティング成形機にかけ、直径約 5 m m、長さ約 8 m mの短棒状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0℃に再加熱して流動可能とし、随意

な他の形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用い、随意的形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、このペーストを非晶質のままに利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

## 【 0 0 4 6 】

## 【実施例 A - 1 0 円盤状成形物】

高純度トレハロース含水結晶 8 5 重量部及び還元水飴（株式会社林原商事販売、商品名『HS - 3 0 0』） 1 5 重量部を均一に混合し、これを直径約 8 mm、深さ約 5 mm のくぼみを複数有しているテフロン製型枠に詰め、これを電子レンジにかけて加熱し、熔融し、水分約 2 . 0 % まで煮詰め、次いで、放冷して、直径約 8 mm、厚さ約 3 mm の円盤状の熱可塑性トレハロース成形物を得た。本品は、無色で透明乃至半透明な実質的に非晶質な成形物で、室内環境での保存安定性が良好で、熱可塑性を有していることから、これを品温約 1 0 0 乃至 2 3 0 °C に再加熱して流動可能とし、随意的他の形状の成形物に変化させることも、又、これを各種機能を有する他の物質と共に用い、随意的形状の成形物に仕上げることも有利に実施できる。また本品は、比較的少量の熱水に溶解させてトレハロース含有ペーストを調製したり、更に、このペーストを非晶質のままに利用することも、又は結晶化させて用いる粉末化基剤として利用することも有利に実施できる。

## 【 0 0 4 7 】

## 【実施例 B - 1 綿状成形物】

実施例 A - 7 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 1 重量部に、レモン濃縮果汁 0 . 0 5 重量部を均一に噴霧して付着させ、乾燥した後、これを綿菓子製造機にかけて約 1 0 0 °C 以上に加熱熔融し綿菓子を製造した。本品は、従来の砂糖を用いた綿菓子が経時的にその体積を縮小し易く、また酸味も付けられない欠点を有しているのとは違って、経時変化の無い酸味の効いたレモン風味のトレハロース含有綿菓子である。

## 【 0 0 4 8 】



## 【実施例 B - 2 被覆成形物】

小麦粉 1 0 0 重量部、イースト 2 重量部、砂糖 5 重量部、マルトース 1 重量部及び無機フード 0 . 1 重量部を、常法に従って、水でこね、中種を 2 6℃で 2 時間発酵させ、その後、3 0 分間熟成し、得られたパン生地を手で丸めた。この表面に実施例 A - 4 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物をパン生地に対し、無水物換算で、約 2 % を部分的に押し込んだ後、常法に従って約 1 8 0℃で焼き上げた。本品は、表面に溶融変形した趣きのあるトレハロース含有被覆成形物を配置したユニークなパンであり、又色相、すだちともに良好で適度な弾力、温和な甘味を有する高品質のパンである。

【 0 0 4 9 】

## 【実施例 B - 3 被覆成形物】

バター 6 0 重量部、砂糖 2 0 重量部、マルトース 2 0 重量部及びトレハロース 2 含水結晶の粉末 1 0 重量部をよく練り合わせ、これに鶏卵 4 0 重量部を加えてクリーム状にする。更に、薄力粉 1 4 0 重量部、コーンスターチ 1 0 重量部及びプルラン 3 重量部を加えて混合し、得られたクッキー生地を天板上に菊口金で絞り出して花模様に成形し、この上に、実施例 A - 5 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物をクッキー生地に対し、無水物換算で約 1 % 付着させて、オーブンにより約 1 7 0℃で 1 5 分間焼き上げた。この製品は、溶融変形した趣きのあるトレハロース含有被覆成形物とクッキー生地の肌別れもなく、充分接着しており、又、風味、口当たりも良好であった。

【 0 0 5 0 】

## 【実施例 B - 4 顆粒状成形物】

実施例 A - 2 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 1 5 重量部及びプレーンヨーグルト 2 重量部と無水トレハロース粉末 1 0 重量部との混合粉末を、約 1 0 0℃に加熱し二軸式押出成形機にかけてトレハロース含有顆粒状成形物を製造した。本品は、ヨーグルト風味の甘味成形物で、プレミックス、冷菓、ケーキなどの製菓材料、経管流動食などの治療用栄養剤として、更には、例えば、マーガリンホイップクリーム、スプレッド、チーズケーキ、ゼリーなどに含有せしめヨーグルト風味の製品にするなど有利に利用できる。

## 【 0 0 5 1 】

## 【実施例 B - 5 台形状成形物】

実施例 A - 3 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 3 0 重量部、 $\alpha$ -グルコシル-L-アスコルビン酸 1 重量部、 $\alpha$ -グルコシルヘスペリジン 1 重量部、硫酸ナトリウム 1 重量部及び適量の着色料、香料を溶解したアルコール水 1 重量部を、約 1 0 0 °C に加熱し加圧成形機にかけてトレハロース含有台形状成形物を製造した。本品は、1 個約 1 0 g で、美肌剤、色白剤として浴用に好適であり、浴槽に沈めて利用すればよい。本品は、入浴用の場合と同様に、洗顔用水、化粧水などに溶解して利用することも有利に実施できる。

## 【 0 0 5 2 】

## 【実施例 B - 6 楕円球状成形物】

実施例 A - 2 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 5 0 0 重量部、粉末卵黄 2 7 0 重量部、脱脂粉乳 2 0 9 重量部、塩化ナトリウム 4 . 4 重量部、塩化カリウム 1 . 8 5 重量部、硫酸マグネシウム 4 重量部、チアミン 0 . 0 1 重量部、アスコルビン酸ナトリウム 0 . 1 重量部、ビタミン E アセテート 0 . 6 重量部及びニコチン酸アミド 0 . 0 4 重量部の混合物を、約 1 0 0 °C に加熱し加圧成形機にかけてトレハロース含有楕円球状成形物を製造した。本品は、栄養剤成形物として好適であり、1 球約 5 g で、口で溶かして利用され、病人の治療用栄養剤として、又、健常人の健康の維持、増進などに有利に利用される。

## 【 0 0 5 3 】

## 【実施例 B - 7 顆粒状成形物】

実施例 A - 1 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 1 0 重量部及び炭酸ナトリウム粉末 1 重量部の混合物を、約 1 0 0 °C に加熱し二軸式押出成形機にかけてトレハロース含有顆粒状成形物を製造した。本品は、炭酸ナトリウム粉末の飛散の恐れのない取扱い容易な pH 調節剤として、各種用途に幅広く利用できる。

## 【 0 0 5 4 】

## 【実施例 B - 8 短管状成形物】

実施例 A - 2 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 1 0 0 重量部、魚粉 2 0 0 重量部、 $\alpha$ 化澱粉 2 0 重量部、プルラン 3 重量部及び水 1 0 重量部の混合物

を、約 1 1 0℃ に加熱し押出成形機にかけて短管状成形物とし、これを約 1 0 % セラックアルコール溶液に浸漬し、直ちに引き上げて熱風で乾燥して、トレハロース含有短管状成形物を製造した。本品は、水を汚染することの少ない飼料で、淡水、海水を問わず、養殖用、鑑賞用、魚介類、甲殻類などの飼料として好適である。

## 【 0 0 5 5 】

## 【実施例 B - 9 植木鉢】

実施例 A - 6 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 1 0 0 重量部とグリセリン 1 5 重量部及び古紙パルプ 5 0 重量部の混合物を、約 1 5 0℃ に加熱し射出成形機にかけて植木鉢を成形し、溶融ワックスに浸漬し、放冷してトレハロース含有植木鉢を製造した。本品は、徐崩性、生分解性であるため、移植用植木鉢として好適であり、鉢をはずすことなく移植することができるので、植え痛みがない。

## 【 0 0 5 6 】

## 【実施例 B - 1 0 短棒状成形物】

実施例 A - 1 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 6 0 重量部、サンゴ粉末 3 0 重量部及びコーンスティープリカー 2 重量部の混合物を、約 1 1 0℃ に加熱し押出成形機にかけて短棒状のトレハロース含有植物活性化剤成形物を得た。本品は、容器が不要で、取り扱いが容易であり、使用時に適度な速度で溶解、崩壊するので持続性植物活性化剤として好適である。

## 【 0 0 5 7 】

## 【実施例 B - 1 1 ゴルフティー】

実施例 A - 4 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 1 0 重量部、酸性白土 4 重量部及びプルラン 0 . 5 重量部の混合物を、約 1 6 0℃ に加熱し射出成形機にかけてゴルフティーを成形し、約 1 0 % セラックアルコール溶液に浸し、乾燥して製品を得た。本品は、ショットにより、小塊に破壊され、雨水で徐々に崩壊し、生分解される。従って、ゴルフ場の美観を損なわず、環境も破壊しない。また、適度なトレハロースの散布は、ゴルフ場の芝の生育を活性化する。

## 【 0 0 5 8 】

## 【実施例 B - 1 2 フィルム状成形物】

低密度ポリエチレン 9 2 重量部、実施例 A - 3 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 8 重量部、ステアリン酸カルシウム 0 . 0 5 重量部、酵素処理ルチン 0 . 5 重量部及び茶抽出物 0 . 5 重量部の混合物を、約 1 2 0 ℃ に加熱し加圧成形機にかけて短棒状成形物とし、次いで、これを常法に従って、約 1 3 0 ℃ に加熱し押出成形機（インフレーション法）にかけてフィルム状成形物を製造した。本品は、花、野菜、果物、肉、魚など生鮮食品の鮮度保持用フィルムとして有利に利用できる。

## 【 0 0 5 9 】

## 【実施例 B - 1 3 直方体成形物】

実施例 A - 7 の方法で得た熱可塑性トレハロース成形物 1 5 0 重量部を約 1 0 0 ℃ に加熱し、これにゼラチン 1 3 重量部を水 1 8 重量部に加熱溶解したものを混合し、更に旨味料、着色料、香料の適量を混合して押出し成形機にかけてシート状成形物を得た。これを切断して直方体成形物とした。本品は、適度な弾力性を有し、風味良好なグミキャンディーとして好適である。

## 【 0 0 6 0 】

## 【発明の効果】

上記したように、本発明の熱可塑性トレハロース成形物は、良好な熱可塑性を有し、耐湿性、耐熱性、耐酸性、耐アルカリ性、保存安定性に優れ取扱い容易であることから、この熱可塑性を利用して繰り返し成形できる特徴を有している。

## 【 0 0 6 1 】

この熱可塑性トレハロース成形物の製造に際し、トレハロース溶液の付着力を低減させて、成形時の作業性を改善することも有利に実施できる。

## 【 0 0 6 2 】

本発明の熱可塑性トレハロース成形物を加熱して流動可能とし、随意的な形状の成形物を容易に製造することができる。この成形に際して、各種の機能性物質や有効成分、例えば飲食品材料、化粧品材料、医薬品材料、農水畜産材料、プラスチック成形材料などを混合して成形することも好都合である。

## 【 0 0 6 3 】

このようにして得られる成形物は、随意的な形状に容易に成形できるだけでなく、トレハロースが比較的不安定な機能性物質や有効成分を安定化することから付加価値が向上し、加えて、トレハロースを含んでいることから、徐崩性、生分解性の成形物となり、地球環境に易しい成形物と言える。

【 0 0 6 4 】

従って、本発明が与える影響は、広範囲に及び、食品業界、化粧品業界、医薬品業界、農水畜産業界、プラスチック業界、家庭用品業界などの産業界に与える工業的意義は極めて大きい。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 本発明は、トレハロースを用いて、随意的な形状の成形物を容易に製造することを課題とする。

【解決手段】 熱可塑性トレハロース成形物を提供し、又、トレハロース溶液を用いて成形することを特徴とする当該熱可塑性トレハロース成形物の製造方法を提供し、併せて、当該熱可塑性トレハロース成形物を加熱して流動可能とし、随意的な形状に成形することを特徴とするトレハロース含有成形物の製造方法を提供し、更に、トレハロース水溶液の付着力低減方法とその用途を提供して課題を解決する。

【選択図】 なし

特2000-079236

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-079236
受付番号	50000342317
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成12年 3月27日

### <認定情報・付加情報>

【提出日】 平成12年 3月22日

次頁無

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000155908]

1. 変更年月日	1998年10月21日
[変更理由]	住所変更
住 所	岡山県岡山市下石井1丁目2番3号
氏 名	株式会社林原生物化学研究所





## DECLARATION

I, Mitsuo SUMA

a citizen of Japan

of 5-44, 5-chome, Kamiimaizumi, Ebina-shi, Kanagawa, Japan

do solemnly and sincerely declare that I have a competent knowledge of English and Japanese languages and that the following is a true and accurate translation of the attached certificate numbered 2000-3089688 and dated 27th October 2000.

4th November 2000

Mitsuo SUMA

RECEIVED  
APR 30 2001  
TECHNOLOGY CENTER 1700

PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

Date of Application: 22nd March 2000

Application Number: Patent Application No. 079236/2000

Applicant(s): KABUSHIKI KAISHA HAYASHIBARA SEIBUTSU KAGAKU  
KENKYUJO

Dated this 27th day of October 2000

Commissioner,

Patent Office

Kozo OIKAWA

Certificate No. 2000-3089688

【Document】	Patent Application		
【Our Ref.】	10082604		
【Address】	to the Commissioner of the Patent Office		
【Int. Classification】	A 23 G 3/00	A 23 L 7/00	A 61 K 9/00
	A 61 K 47/26	C 07 H 3/04	
【Inventor】			
【Address】	377-4, Kibitsu, Okayama-shi, Okayama, Japan		
【Name】	Naohiko KATAGIRI		
【Inventor】			
【Address】	1-30, Shinogoze, Okayama-shi, Okayama, Japan		
【Name】	Michio KUBOTA		
【Inventor】			
【Address】	3-23, 1-chome, Ishima-cho, Okayama-shi, Okayama, Japan		
【Name】	Toshio MIYAKE		
【Applicant】			
【ID Number】	000155908		
【Name】	KABUSHIKI KAISHA HAYASHIBARA SEIBUTSU KAGAKU KENKYUJO		
【Representative】	Ken HAYASHIBARA		
【Claiming Priority based on the preceding Application】			
【Filing Number】	299575/1999		
【Filing Date】	21st October 1999		
【Claiming Priority based on the preceding Application】			
【Filing Number】	025100/2000		
【Filing Date】	2nd February 2000		
【Payment of the fee】			
【Number of Prepayment Account】	035736		
【Amount to be paid】	¥ 21, 000		
【List of the Filing Documents】			
【Document】	Specification	1 copy	

【Document】

Abstract

1 copy

【Requirement of proof】

Yes

[Document name]        Specification

[Title of the Invention]        Thermoplastic        shaped-body        of  
trehalose, process and uses thereof

[Claims]    1.    A thermoplastic shaped-body of trehalose.

2.    The thermoplastic shaped-body of trehalose of claim 1, which comprises a substance capable of lowering the adhesion of a trehalose solution and which has a moisture content of not higher than about 8.3 w/w %; or which has no said substance but has a moisture content of not higher than about 2.4 w/w %.

3.    The thermoplastic shaped-body of trehalose of claim 1 or 2, which has a free-flowing ability at temperatures of not lower than 90°C as a temperature thereof.

4.    The thermoplastic shaped-body of trehalose of claim 1, 2 or 3, wherein said trehalose is amorphous.

5.    The thermoplastic shaped-body of trehalose of any one of claims 1 to 4, which has a short diameter of about 0.1-20 mm and a long diameter of not shorter than the short diameter.

6.    The thermoplastic shaped-body of trehalose of any one of claims 1 to 5, which has a form selected from the group consisting of granules, spheres, hemispheres, elliptical spheres, short rods, short pyramids, half corns, cubes, rectangular parallelepipeds, short tubes, and fibers.

7.    A process for producing a thermostable shaped-body of trehalose, which comprises a step of forming a trehalose solution containing a substance capable of lowering the adhesion of said trehalose solution and having a moisture content of not higher than about 8.3 w/w %; or containing no said substance but having a moisture content of not higher than about 2.4 w/w %.

8. The process of claim 7, wherein said trehalose solution is prepared by melting hydrous crystalline trehalose or anhydrous crystalline trehalose under heating conditions; or by concentrating an aqueous trehalose solution under heating conditions.

9. The process of claim 7 or 8, wherein said substance is a hydrophobic and/or hydrophilic organic substance.

10. The process of claim 7, 8 or 9, wherein said thermoplastic shaped-body of trehalose contains trehalose in an amount of over 60 w/w %, on a dry solid basis.

11. A process for producing a shaped-body containing trehalose, which comprises the steps of heating either said thermoplastic shaped-body of trehalose of any one of claims 1 to 6 or said thermoplastic shaped-body of trehalose produced by the process of any one of claims 7 to 10 to impart a free-flowing ability thereunto, and forming the resultant alone or in combination with other substance.

12. The process of claim 11, which uses said thermoplastic shaped-body of trehalose to said other substance in a ratio of not lower than 1.0 w/w %, on a dry solid basis.

13. The process of claim 11 or 12, wherein said other substance is a material selected from the group consisting of food materials, cosmetic materials, pharmaceutical materials, plastic materials, and materials for agriculture, fishery, and live stocks.

14. The process of claim 11, 12 or 13, wherein the method used in said forming step is a technique selected from the group consisting of stamping forming, cutting forming, crystallizing forming, injection molding, extrusion, blow

molding, plate forming, casting molding, pressure forming, compression molding, calendar molding, laminate molding, coating molding, rotational molding, spray molding, fixing molding, and blister molding.

15. The process of claim 11, 12, 13 or 14, wherein said shaped-body containing trehalose is used in food products, cosmetics, pharmaceuticals, agriculture, fishery, live stocks, gradually-disintegrable plastics, biodegradable shaped-bodies, or household articles.

16. A method for lowering the adhesion of a trehalose solution, comprising a step of, when concentrated by heating, either controlling the moisture content of said trehalose solution to a level not higher than about 8.3 w/w % in the presence of a substance capable of lowering the adhesion of said trehalose solution, or controlling the moisture content of said trehalose solution to a level not higher than about 2.4 w/w % in the absence of said substance.

17. The method of claim 16, wherein said substance capable of lowering the adhesion of said trehalose solution is a hydrophobic and/or hydrophilic organic substance.

18. The method of claim 16 or 17, wherein said organic substance is a member selected from the group consisting of lipids, carbohydrates, saccharides, polyalcohols, and emulsifiers.

19. The method of claim 17, 18 or 19, wherein said substance capable of lowering the adhesion of said trehalose solution is allowed to coexist in an amount of less than 40 w/w % to said trehalose, on a dry solid basis.

20. A thermoplastic shaped-body of trehalose, which

is obtainable by forming the trehalose solution whose adhesion has been lowered by the method of any one of claims 17 to 20.

21. The thermoplastic shaped-body of trehalose of claim 20, which has a free-flowing ability at temperatures of over 90°C as a temperature thereof.

[Detailed Description of the Invention]

[Field of the Invention]

The present invention relates to a thermoplastic shaped-body of trehalose, process and uses thereof, and more particularly, to a thermoplastic shaped-body of trehalose, process for producing the thermoplastic shaped-body of trehalose characterized in that it comprises a step of preparing the shaped-body of trehalose by forming a trehalose solution, process for producing a shaped-body containing trehalose comprising a step of heating the thermoplastic shaped-body of trehalose to impart it free-flowing ability and forming the resultant, method for lowering the adhesion of a trehalose solution, and uses thereof.

[Prior Art]

As disclosed in "*Chemical Industry*", pp. 57-65, June 1999, trehalose is being produced from starches as materials in an industrial scale and is widely used especially in food industries. However, methods for forming trehalose in use is restricted; Trehalose is merely used by mixing crystalline or powdery trehalose with fillers or binders and forming the resulting mixture into tablets; or dissolving by heating in water crystalline or powdery trehalose and other saccharide(s) in an amount exceeding trehalose, concentrating by boiling the resulting mixture, pouring the mixture into molds, cooling the



resultant to form candies. These methods require relatively-specific machines and relatively-high techniques; the obtained shaped-bodies are too monotonic in their shapes. As an arbitral-shape of product containing trehalose, for example, it is substantially difficult to produce a cotton-like shaped-body because commercially-available crystalline or powdery trehalose could not be processed with cotton-candy-machines and could not be processed well into cotton candies like those processed with rock candies. It has been demanded a process for producing shaped-bodies having arbitral shapes by using trehalose.

[Object of the Invention]

The object of the present invention provides a process for easily producing shaped-bodies having arbitral shapes by using trehalose.

[Means to Attain the Object]

To attain the above object the present inventors eagerly studied on the process for producing shaped-bodies of trehalose. As a result, they found that high-trehalose-content glassy shaped-bodies have higher storage stability than those processed with other saccharides, have desired thermoplasticity and satisfactory heat-resistance, have easiness of forming into shaped-bodies having arbitral shapes after heated to impart them free-flowing ability, and have easiness of forming repeatedly by using the above properties. Thus, the present inventors accomplished this invention. Based on the findings that high-trehalose-content glassy shaped-bodies have satisfactory thermoplasticity and stability, the present inventors solved the above object by providing a thermoplastic shaped-body of trehalose; a process for producing the thermoplastic shaped-body

of trehalose characterized in that it comprises a step of either forming a trehalose solution with a substance capable of lowering the adhesion of the trehalose solution and having a moisture content of not higher than about 8.3 w/w % (throughout the specification, the term "w/w %" is abbreviated as "%" hereinafter, unless specified otherwise), or forming a trehalose solution having no such a substance but a moisture content of not higher than about 2.4%; a process for producing a shaped-body containing trehalose by heating the above thermoplastic shaped-body of trehalose to impart it free-flowing ability and forming the resultant into a product having an appropriate shape along with or without other substance(s); a method for lowering the adhesion of a trehalose solution characterized in that it comprises a step of, when concentrated by heating, either lowering the moisture content of the trehalose solution to a level of not higher than about 8.3% in the presence of a substance capable of lowering the adhesion of the trehalose solution, or lowering the moisture content of the trehalose solution to a level of not higher than about 2.4%; and a thermoplastic shaped-body of trehalose obtainable by using these processes and methods.

[Preferred Embodiments of the Invention]

The trehalose used in the present invention is also called  $\alpha,\alpha$ -trehalose, and the origin is not restricted. For example, trehalose prepared from yeasts as disclosed in Japanese Patent Kokai No. 246,097/95, one prepared from maltose by using phosphorylases as disclosed in Japanese Patent Kokai No. 216,695/83, and ones prepared from starches by using enzymatic saccharifications as disclosed in Japanese Patent Kokai Nos.

170,977/95, 213,283/95, etc. Commercially available high-purity hydrous or anhydrous crystalline trehaloses, etc., can be arbitrarily used. For example, "TREHA®", a high-purity hydrous crystalline trehalose commercialized by Hayashibara Shoji, Inc., Okayama, Japan, can be advantageously used.

The thermoplastic shaped-body of the present invention has satisfactory storage-stability at ambient temperature and moisture, does not substantially change on standing, and has properties of being easily formed into products with an appropriate shape after melted by heating to impart it free-flowing ability, as well as of maintaining its characteristics even when repeatedly shaped and melted twice or more and being easily regenerated.

The thermoplastic shaped-body of the present invention is a shaped-body which comprises a substance capable of lowering the adhesion of a trehalose solution and has a moisture content of not higher than about 8.3%, preferably, not higher than about 4.4%; or which comprises such a substance and has a moisture content of not higher than about 2.4%, preferably, not higher than about 2.0%. Examination of plasticizing temperatures of the above shaped-bodies on heating revealed that they were softened at temperatures of about 70°C to about 90°C and in a free-flowing state at temperatures of about 90°C or more, and even those which require higher temperatures were in such a state at temperatures of about 100°C to about 120°C. The process for producing the thermoplastic shaped-body of the present invention can be selected from the following appropriate ones: For example, the thermoplastic shaped-bodies can be prepared by providing hydrous or anhydrous crystalline

trehalose; and directly or after moistened with appropriate amount of water, heating and melting or melting by heating the resultant at a higher temperature as high as possible, preferably, at a temperature over 160°C, more preferably, a temperature of about 165°C to about 230°C, most preferably, a temperature of about 170°C to 220°C, to make into a glassy state. In addition, the shaped bodies can be prepared by providing aqueous trehalose solutions prepared by the above enzymatic reactions, those prepared by hydrogenating the aqueous trehalose solutions, those prepared by dissolving hydrous crystalline trehalose in water; preferably, those having a moisture content of at least 30%, more preferably, a moisture content of 30% but below 50%, corresponding to those with a trehalose concentration of below 70%, more preferably, about 50% but below 70%; concentrating by heating the resulting trehalose solutions under normal or reduced pressure into high-concentrated trehalose solutions; and allowing the solutions to make into their glassy states.

In the case of concentrating the aqueous trehalose solutions by heating, the moisture content and the solution temperature are closely related each other; Under normal pressure, the temperatures of the aqueous trehalose solutions are 115°C, 125°C, 145°C, 165°C and 185°C which correspond to the moisture contents of 15.3%, 9.9%, 5.2%, 2.4% and 1.1%, respectively. During the process for examining their relationship, the present inventors found an unexpected phenomenon that the adhesion of aqueous trehalose solutions greatly changed depending on the moisture content of or the temperature of the solutions when concentrated by heating. The

findings are: The adhesion of trehalose solutions increases as the moisture content of the solutions decreases to a level below about 10% when concentrated by heating, particularly, highly increases when the moisture content decreases to about 8.3% or lower, then reaches to the maximum level when the moisture content becomes to about 4.4% to about 3.0% after further concentrated and the free-flowing ability of the solution decreases. When the trehalose solutions are further continuously concentrated by heating, the adhesion of the solutions reversibly decreases when the moisture content becomes to less than 3%, and the adhesion and the free-flowing ability of the solutions are improved to an extent that does not hinder the handleability of their forming when the moisture content becomes to about 2.4% or lower, preferably, to about 2.0% or lower.

To improve the handleability by lowering the extraordinary-increased adhesion of trehalose solutions, the present inventors energetically studied and found that the coexistence of a substance capable of lowering the adhesion of trehalose solutions is advantageous, and this effectively decreases the adhesion of high-purity trehalose solutions by a large margin and lowers the foaming of the solutions during their concentration by heating, resulting in improvement of handleability and easiness of the process for preparing shaped-bodies.

The substances capable of lowering the adhesion of the above trehalose solutions usable in the present invention include any substances as long as they lower the adhesion of the trehalose solutions. For example, preferable substances are

organic substances selected from hydrophobic substances such as lipids and carbohydrates, hydrophilic substances such as saccharides and polyalcohols, and emulsifiers having both hydrophobic- and hydrophilic-properties. In use, these substances are preferably present in an amount of less than about 40%, and preferably less than 30% with respect to the trehalose content, on a dry solid basis (d.s.b.).

The lipids used in the present invention can be preferably one or more members from oils, fats and fatty acids; hydrocarbons, which are in liquid forms at about 100°C to 230°C, such as alkanes, alkenes and heterocyclic compounds; saccharides such as monosaccharides and oligosaccharides excluding trehalose, mono- and di-saccharide alcohols; polyalcohols such as glycerine, diethylene glycol, and propylene glycol; and emulsifiers such as sucrose fatty acid esters, glycerine fatty acid esters, poly glycerine fatty acid esters, and lecithin.

As described above, the thermoplastic shaped-body of trehalose of the present invention can be produced by either concentrating trehalose solutions to give a prescribed moisture content, preferably, to a moisture content of not higher than about 8.3%, by using the method for lowering the adhesion of the solutions by coexisting the above substances capable of lowering the adhesion of the solutions, and forming the concentrates into shaped-bodies in a glassy state; or concentrating trehalose solutions to give a preferable moisture content of not higher than about 2.4% without coexisting the substance capable of lowering the adhesion of the solutions and forming the concentrates into shaped-bodies in a glassy state. The method of forming used arbitrarily in the present invention includes,

for example, conventional ones such as stamping molding, cutting molding, atmospheric molding, molding in water or oils, extrusion, pressure forming, particularly, biaxial extrusion, etc.

To keep satisfactory shelf-life and thermoplasticity, the thermoplastic shaped-body thus obtained should preferably contain trehalose as much as possible; usually, those which contain trehalose in an amount over 60%, d.s.b., preferably, not less than about 70%, more preferably, not less than about 80%, and more preferably, not less than about 90%.

The form of the thermoplastic shaped-body used preferably in the present invention can be those which are easily processed on conventional forming- or molding-machines or apparatuses when the thermoplastic shaped-body as a material is heated to show free-flowing ability and formed into an appropriate shape; and those which can be easily heated, and if necessary, after pressed or reduced, to easily melt to show free-flowing ability, and formed to impart it an appropriate shape by using the above machines or apparatuses.

Preferable concrete examples of the forms of the thermoplastic shaped-body are usually those having a short diameter of about 0.1-20 mm, and preferably, about 2-15 mm, and a longer diameter of equal to or longer than the short diameter. As the forms of the thermoplastic shaped-body, granules, spheres, hemispheres, elliptical spheres, short rods, short pyramids, half corns, cubes, rectangular parallelepipeds, short tubes, and fibers can be arbitrarily used. Generally, the form called pellet is preferably used.

The thermoplastic shaped-body thus obtained generally

contains a substance capable of lowering the adhesion of trehalose solutions and has a moisture content of not higher than about 8.3%, preferably, not higher than about 4.4%; or has a moisture content of not higher than about 2.4%, preferably, not higher than about 2.0% without containing the above substance. In either case, the thermoplastic shaped-body contains trehalose in an amount of over 60%, d.s.b., and preferably, in an amount of not lower than about 70%, d.s.b., wherein the trehalose is amorphous and transparent or translucent; relatively-high in moisture-resistant, heat-resistant, acid-resistant, alkaline-resistant, and shelf-life; and easily handleable. The thermoplastic shaped-body of the present invention can be used, for example, by dissolving in a small amount of hot water into a high trehalose content paste, and further used as a base for pulverization by coexisting a trehalose crystal seed in the resulting mixture to crystalize trehalose to facilitate the pulverization.

The most valuable use of the thermoplastic shaped-body of the present invention is for the use using its thermoplasticity; the thermoplastic shaped-body can be arbitrarily reheated to melt to impart it free-flowing ability, then directly formed into appropriate shapes; or can be arbitrarily formed into shaped-bodies containing trehalose by processing with other substances in such a manner of coating, mixing, fixing, inserting, enclosing, etc.

Varying depending on the kind or content of the substances capable of lowering the adhesion of trehalose solutions, the heating conditions used in the present invention are those which melt and soften the thermoplastic shaped-bodies



of trehalose, preferably, which make them into their liquid states or free-flowing conditions for ease of forming into appropriate shapes. The softening temperature is generally adjusted by heating to about 70°C to about 90°C for a product temperature, while the temperature for imparting free-flowing ability is adjusted by heating to about 90°C or higher, and preferably about 100°C to about 120°C or higher for a product temperature. In general, when the thermoplastic shaped-bodies have a relatively-high moisture content of not higher than about 8.3% but over 2.4%, the temperature for imparting free-flowing ability is set to a relatively-low temperature, generally, to a temperature of at least about 90°C, and preferably to a temperature of about 100°C to about 160°C. While in the case of having a relatively-low moisture content of about 2.4% or lower, the thermoplastic shaped-bodies are heated to a relatively-high temperature, generally, to a temperature of about 100°C or higher, and preferably to a temperature selected from about 110°C to about 230°C.

When formed along with other substances, the thermoplastic shaped-bodies of trehalose can be selectively treated, for example, by first mixing with other substances, then heating to impart them free-flowing ability and forming into appropriate shapes; or first heating only the thermoplastic shaped-bodies of trehalose to impart them free-flowing ability, then mixing with other substances and forming into appropriate shapes. If necessary, the thermoplastic shaped-bodies of trehalose can be moistened or admixed with a small amount of water to lower their melting temperatures or to accelerate the mixing.

Any substances can be arbitrarily used as the other substances used in the present invention as long as they can be formed into stable shaped-bodies of the present invention when used in combination with the thermoplastic shaped-bodies of trehalose; materials and crude ingredients including additives generally used in the fields including chemical industries where the thermoplastic shaped-bodies of trehalose can be used, for example, in the fields of food products, cosmetics, pharmaceuticals, agriculture, fishery, live stocks, plastics, household articles, etc. More particularly, the followings, which are generally used in one or more of the aforesaid fields, can be selectively used depending on purposes: For example, a sweetener, filler, coloring agent, color-developing agent, fermentation-controlling agent, flavor, aromatic, enhancer, baking powder, preservative, sterilizer, oxidation-preventing agent, antioxidant, bleaching agent, gum, stabilizer, emulsifier, tenderizer, quality-improving agent, seasoning, spice, wax, bitter agent, sour agent, processing aid, enzyme preparation, gum base, surfactant, plasticizer, smooth and gloss-imparting agent, solubilizing agent, reductant, buffer, base, adsorbent, taste-imparting agent, binder, suspending agent, coating agent, lubricant, lubricant-controlling agent, filler, anti-foaming agent, refreshing agent, adhesive, enhancer, mastication agent, sugar-coating agent, isotonicity-imparting agent, sticking agent, stickiness enhancer, agent for consistency, consistency-imparting agent, inflammatory inhibitor, heat-generating agent, foaming agent, skin protective, excipient, disperser, pH-controlling agent, decaying agent, decaying aid, anti-rust agent, anti-humectant,

antiseptic, fungicidal, preservative, pain-removing agent, vitamin, antibiotic, chemotherapeutic agent, anti-allergic, anti-histaminic, antalgic, antipruritic, astringent, anti-inflammatory, steroid, hormone, cardiac, dental/oral agent, anastaltic, ultraviolet absorber, algicide, thermoplastic resin, synthetic resin, crystallization-preventing agent, deterioration-preventing agent, retrogradation-preventing agent, burning preventive, resin-hardening agent, coagulant, foaming agent, foaming stabilizer, anti-static agent, curing agent, etc. In particular, examples of the above materials and crude ingredients used in the field of food products are saccharides such as starches, amyloses, amylopectins, pregelatinized starches, dextrans, substantially-indigestive dextrans, starch derivatives, pullulan, pectin, alginic acid, polysaccharides, dietary fibers, monosaccharides, oligosaccharides including functional oligosaccharides, and sugar alcohols; proteins such as casein, gelatin, collagen, albumin, and myosin; and others including polypeptides, oligopeptides, amino acids, oils and fats, and minerals.

The more the trehalose content in the thermoplastic shaped-bodies of trehalose obtained by forming with other substances, the more they are preferably used since trehalose present in the shaped-bodies generally improves the stability of relatively-unstable functional substances and effective ingredients such as the aforesaid vitamins, lipids, proteins, effective substances, and physiologically-active substances. In general, the trehalose content is relatively-low in the shaped-bodies which the surfaces are coated with trehalose, while the content is relatively-high in those prepared by

homogeneously mixing trehalose with other substances and solidifying the whole contents. In the present invention, since the thermoplastic shaped-bodies of trehalose should be formed or molded into appropriate shapes, they are generally incorporated into other substances in an amount of at least about 1.0%, preferably, at least about 2.0%, more preferably, at least about 5.0%, and more preferably, at least about 10% to the other substances, d.s.b. The form of the resulting shaped-bodies is appropriately selected from those which comprise point-, line-, face-, and stereoscopic-structures such as granules, rods, plates, sheets, films, tubes, laminates, and sponges.

Depending on final shapes, the method for forming the above shaped-bodies is appropriately selected from conventional ones such as stamping molding, cutting molding, injection molding, extrusion, blowing molding, plate molding, casting molding, compression molding, pressure forming, calendar molding, laminating molding, film forming, rotation molding, spraying molding, fixing molding, blister molding, etc.

Depending on other substances used in combination and functional substances and effective ingredients contained therein, the above shaped-bodies containing trehalose obtained by transforming into other forms can be arbitrarily used after formed into food products, cosmetics, pharmaceuticals, products for agriculture, fishery, and live stocks, gradually-disintegrable plastics, biodegradable shaped-bodies, and house articles, etc.

The following experiments describe the present invention:

## Experiment 1

### Influence of boiling down temperature or moisture content of saccharide solutions on their adhesiveness and storage stability of shaped bodies formed therewith

As saccharides, non-reducing saccharides, i.e., anhydrous crystalline maltitol and crystalline trehalose dihydrate were provided, respectively placed in a pan, and heated after admixed with water into a 50% aqueous saccharide solution. The aqueous solutions were continued heating to boil and concentrate. When the saccharide solutions reached to respective temperatures of 120°C, 130°C, 140°C, 150°C, 160°C, 170°C, 180°C and 190°C, a glass rod having a diameter of 4 mm was inserted into each saccharide solution three centimeters in depth from the liquid surface, followed by holding the glass rod thereat for three seconds and then pulling up gently. The weight of the saccharide solution adhered to the glass rod was calculated by weighing the total weight of the glass rod and the saccharide solution and reducing only the weight of the glass rod from the total weight. Each saccharide solution boiled down was sampled and placed in a small depositor and cooled to ambient temperature into a shaped-body as a sample, 20 mm in length, 15 mm in width, and 5 mm in thickness. Shaped-bodies formed within 24 hours after processing were measured for moisture. The moisture content was determined by the diatomaceous earth method under overnight-drying conditions at 80°C and at a reduced pressure of 50 mmHg or lower.

A portion of each of the same samples was placed in a Petri dish and allowed to stand at a relative humidity of about 70% and at 25°C for 10 days before observing the presence

of adhesion.

The level of adhesion was evaluated by examining the level of the samples adhered to the Petri dishes after absorbing moisture and classifying the levels into two ranks of "Yes" and "No" as a rough indication of storage stability. The results are in Table 1.

### Table 1

[illegible]

As evident from Table 1, it was found that, in the case of trehalose, the weight of trehalose solution adhered to the glass rod unexpectedly and remarkably increased from 120°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture contents of about 12%, to 160°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture contents of about 3.0%, respectively; while the moisture content decreased at temperatures over the above temperature range, meaning that the trehalose solution less adhered to the glass rod as the temperature increased from 160°C to 190°C in spite of the increment of trehalose concentration. It was found that the adhesive of trehalose solution highly increased at temperatures of 130°C or higher, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 8.3%, and reached to a maximum level at temperatures of about 150°C to about 160°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture contents of about 4.4% to about 3.0%, then gradually decreased at temperatures of over 160°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture contents of less than about 3%.

In the case of the maltitol solution as a control, it was observed that the amount of the maltitol solution adhered to the glass rod slightly increased at temperatures from 120°C to 150°C and decreased at temperatures from 150°C to 190°C, and found that the level of alteration was negligible as compared with trehalose solution. Based on these data, it was revealed that, when trehalose solution is boiled down, the adhesion of trehalose solution highly increases up to 160°C and this hinders the processibility during its forming or molding, and that the drawback should be improved. It was also found that the



adhesion of trehalose solution decreased when boiled down at temperatures of 165°C or higher, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 2.4% or lower, and the free-flowing ability was remarkably improved to ease the processibility of the handling of trehalose solution by a large margin. It was found that, unlike shaped-bodies processed with maltitol solution, those with trehalose solution do not substantially change on standing when stored at a relative humidity of 70% and at ambient temperature and have satisfactory moisture-resistant and storage stability.

## Experiment 2

### Method for lowering adhesion

Five hundred and fifty parts by weight of crystalline trehalose dihydrate were placed in a stainless-steel pan, admixed with, as a substance capable of lowering adhesion of trehalose solution, 50 parts by weight of safflower oil, 50 parts by weight of salad oil, 150 parts by weight of anhydrous crystalline maltitol, or 158 parts by weight of crystalline lactitol monohydrate, and further mixed with 450 parts by weight of water, followed by completely dissolving the saccharides while heating. Then, the heating was continued to boil down each saccharide solution. When reached to temperatures of 120°C, 130°C, 140°C, 150°C, 160°C, 170°C and 180°C, the saccharide solutions were subjected to measurement of the weight of each saccharide solution adhered to a glass rod similarly as the method in Experiment 1. In accordance with the method in Experiment 1, using the boiled-down solutions, they were respectively processed into shaped-bodies, then measured for moisture content within 24 hours after their processings. The

results are in Table 2 where the trehalose content in each saccharide solution is shown in parallel, based on a dry solid.

Table 2

Saccharide	Coexisting substance (Trehalose content (% d.s.b.))	Item measured	Boiled down temperature (°C under normal pressure)						
			120	130	140	150	160	170	180
Non (100%)		Adhered content (g)	0.230	0.569	0.890	1.250	1.726	0.915	0.761
		Moisture content (%)	12.1	8.3	6.1	4.4	3.0	2.0	1.3
		Adhered content (g)	0.150	0.194	0.225	0.256	0.257	0.277	0.278
		Moisture content (%)	12.0	8.2	6.1	4.4	3.0	2.0	1.3
Trehalose	Salad oil (about 91%)	Adhered content (g)	0.195	0.499	0.512	0.596	0.538	0.481	0.428
		Moisture content (%)	12.1	8.3	6.1	4.3	3.0	2.0	1.3
		Adhered content (g)	0.230	0.538	0.861	0.987	0.786	0.607	0.570
		Moisture content (%)	11.4	7.8	5.7	4.2	2.9	2.0	1.3
	Lactitol (about 77%)	Adhered content (g)	0.265	0.466	0.773	0.862	0.919	0.893	0.574
		Moisture content (%)	11.5	7.7	5.7	4.1	2.9	2.0	1.3

As evident from Table 2, it was found that the coexistence of any of safflower oil, salad oil, maltitol, and lactitol significantly inhibited the remarkable increment of the adhesion of trehalose solution at temperatures from 120°C to 160°C, particularly, temperatures from 130°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 8.3%, to 160°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 3.0%; and strongly lowered the adhesion. Particularly, it was found that the adhesion peaks of all the trehalose solutions at temperatures in the range of about 150°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 4.4%, to about 160°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 3.0%, remarkably lowered, resulting in strong reduction of their adhesion.

It was also found that, under the coexistence of the above substances, the adhesion of all the trehalose solutions at temperatures of over 160°C was lower than that of the trehalose solutions alone.

Based on these, it was found that the strong increment of adhesion of trehalose solutions observed during their boiling down at temperatures from 130°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 8.3%, to 160°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 3.0%, is remarkably inhibited by coexisting substances capable of lowering the adhesion of trehalose solution, for example, oils and fats such as safflower oil and salad oil, and saccharides such as maltitol and lactitol. Particularly, the adhesion peak of trehalose solution observed at temperatures from about 150°C, corresponding to a solution with a moisture

content of about 4.4%, to about 160°C, corresponding to a trehalose solution with a moisture content of about 3.0%, remarkably lowered; and more particularly, even under higher temperatures of over 160°C for boiling down, the substances more reduced the adhesion of trehalose solution and remarkably improved the free-flowing ability, resulting in a conclusion that the substances outstandingly improved the handleability of thermoplastic shaped-bodies of trehalose during the processings.

The following Example A describes the thermoplastic shaped-bodies of trehalose according to the present invention, and Example B describes the shaped-bodies containing trehalose as the use examples of Example A:

#### Example A-1

##### Short-rod shaped-body

One hundred and ten parts by weight of "TREHA®", a high-purity crystalline trehalose hydrate commercialized by Hayashibara Shoji, Inc., Okayama, Japan were placed in a dissolving tank, and admixed with and dissolved by heating in 90 parts by weight of water. The solution was concentrated by heating into a concentrate with a temperature of about 190°C and a moisture content of about 0.9% to lower the adhesion of the concentrate. Then, the resulting concentrate was formed by feeding to an extruder, cooled to ambient temperature to obtain a short-rod thermoplastic shaped-body of trehalose, about 2 mm in diameter and about 4 mm in length. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having satisfactory thermoplasticity and storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 100°C to about

230°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

#### Example A-2

##### Elliptic spherical shaped-body

Similarly as in Example A-1, a high-purity crystalline trehalose hydrate was dissolved by heating, and the solution was concentrated by heating, admixed to lower the adhesion of the solution with an olive oil in an amount of about 5% to trehalose, d.s.b., when reaching roughly to a temperature over 110°C at which the adhesion of the concentrate began to increase, and continued concentrating by heating until reaching to a temperature of about 170°C, corresponding to a moisture content of about 2.0%. The resulting concentrate was fed to a stamping-forming machine to obtain an elliptic-spherical thermoplastic shaped-body of trehalose, about 15 mm in length. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having thermoplasticity and satisfactory storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 100°C to about 230°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for

preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

### Example A-3

#### Short square-pillar shaped-body

Similarly as in Example A-1, a high-purity crystalline trehalose hydrate was dissolved by heating, and the solution was concentrated by heating, admixed to lower the adhesion of the solution with propylene glycol in an amount of about 3% to trehalose, d.s.b., when reaching roughly to a temperature of over 110°C at which the adhesion of the concentrate began to increase, and continued heating to boil down until reaching to a temperature of about 165°C, corresponding to a moisture content of about 2.4%. The resulting concentrate was fed to a cutting-forming machine to obtain a short square-pillar thermoplastic shaped-body, a side length of about 5 mm and about 10 mm in height. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having thermoplasticity and satisfactory storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 100°C to about 230°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

#### Example A-4

##### Hemispheric shaped-body

According to the method disclosed in Japanese Patent Kokai No. 73,482/96, a seed culture of a mutant of *Rhizobium* sp. M-11 strain, FERM BP-4130, was inoculated to and cultured in a nutrient culture medium for about 70 hours by a fermenter. After culturing, the resulting culture was filtered to remove cells using an SF membrane to yield an about 100ℓ culture supernatant, followed by concentrating the supernatant with a UF membrane to obtain an about five liters of a crude enzyme concentrate containing about 410 units/ml of a non-reducing saccharide-forming enzyme and about 490 units/ml of a trehalose-releasing enzyme. Corn starch was suspended into an about 33% starch suspension which was then subjected to the action of  $\alpha$ -amylase to obtain a liquefied solution with a DE (dextrose equivalent) of about four. To the liquefied solution were added 0.02 ml/g starch of the above crude enzyme concentrate, 500 units/g starch of isoamylase, and five units/g starch of cyclomaltodextrin glucanotransferase, then subjected to an enzymatic reaction at pH 6.2 and at 40°C for 48 hours. The reaction mixture was heated to inactivate the remaining enzymes, then admixed with 10 units/g substrate of glucoamylase, and enzymatically reacted at 50°C for 10 hours. The resulting reaction mixture, containing 85.6% trehalose, d.s.b., was heated to inactivate the remaining enzyme, and according to conventional manner, purified by decoloration and desalting, and concentrated into a 45% syrup, i.e., a relatively-low reducing saccharide syrup enriched with trehalose. According to conventional manner, the syrup was hydrogenated, purified by



decoloration and desalting, and concentrated into a syrup containing about 85% trehalose, d.s.b., and others mainly composed of sorbitol. The syrup was concentrated and boiled down by heating to a temperature of about 180°C or a moisture content of about 1.3% and to lower its adhesion, and the concentrate was dropped into salad oil through a fine tube and solidified by cooling to obtain a hemispheric thermoplastic shaped-body of trehalose, about 8 mm in base diameter. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having thermoplasticity and satisfactory storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 100°C to about 230°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

#### Example A-5

##### Fibrous shaped-body

Using an electric furnace, crystalline trehalose hydrate was melted by heating to a temperature of about 200-210°C or to a moisture content of about 0.5% or lower. While pouring out of an outlet provided in the basement of the furnace, the melt was blown by air to obtain a fibrous shaped-body, about 0.1-0.2 mm in diameter, followed by disrupting the fibrous shaped-body into a short-rod fibrous shaped-body, less

than about 20 mm in length. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having thermoplasticity and satisfactory storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 100°C to about 230°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

#### Example A-6

##### Short-rod shaped-body

A thermoplastic shaped-body of trehalose obtained by the method in Example A-3 was heated to about 120°C and fed to an extruder to obtain a short-rod thermoplastic shaped-body of trehalose, about 2 mm in diameter and about 4 mm in length. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having a satisfactory thermoplasticity and storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 100°C to about 230°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered

base after crystallization of trehalose.

#### Example A-7

##### Elliptic-spherical shaped-body

One hundred parts by weight of high-purity crystalline trehalose hydrate and 10 parts by weight of "MABIT®", a high-purity anhydrous crystalline maltitol commercialized by Hayashibara Shoji, Inc., Okayama, Japan were placed in a dissolving tank, and admixed with and dissolved by heating in 90 parts by weight of water. After admixed with 0.2 part by weight of sucrose stearic acid ester as an emulsifier, the solution was concentrated and boiled down by heating to a temperature of about 150°C or a moisture content of about 4.3%. The concentrate was fed to a stamping-forming machine to obtain an elliptic-spherical thermoplastic shaped-body of trehalose, about 15 mm in length. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having thermoplasticity and satisfactory storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 90°C to about 160°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

#### Example A-8

##### Short-rod shaped-body

Ninety-five parts by weight of high-purity crystalline

trehalose hydrate and 18 parts by weight of palatinit were placed in a dissolving tank, and admixed with and dissolved by heating in 63 parts by weight of water. The solution was placed in a concentrator, concentrated to boil down by heating to 125°C under reduced pressure, continued concentrating by heating under reduced pressure while keeping the temperature until reaching to a moisture content of about 1.0%. Similarly as in Example A-1, the concentrate was subjected to an extruder for forming, cooled to ambient temperature to obtain a short-rod thermoplastic shaped-body of trehalose, about 2 mm in diameter and about 4 mm in length. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having thermoplasticity and satisfactory storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 90°C to about 160°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

#### Example A-9

##### Short-rod shaped-body

Eighty parts by weight of high-purity crystalline trehalose hydrate and 20 parts by weight of high-purity anhydrous crystalline maltitol were mixed and pulverized, then mixed with about 20-fold volumes of salad oil preheated to about 180°C. The mixture was heated to melt into a melt with a

moisture content of about 1.3% which was then transferred to a cutting molder and processed therewith into a short-rod thermoplastic shaped-body of trehalose, about 5 mm in diameter and about 8 mm in length. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having thermoplasticity and satisfactory storage-stability under indoor circumstances, it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 90°C to about 160°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

#### Example A-10

##### Disk-type shaped-body

Eighty-five parts by weight of high-purity crystalline trehalose and 15 parts by weight of "HS-300", a hydrogenated starch syrup commercialized by Hayashibara Shoji, Inc., Okayama, Japan were mixed to homogeneity. The mixture was packed in a teflon mold having a plurality of pits, about 5 mm in diameter and about 3 mm in depth, heated to melt on a microwave oven, boiled down to lower the moisture content to about 2.0%, and cooled to obtain a disk-type thermoplastic shaped-body of trehalose, about 8 mm in diameter and about 3 mm in thickness. Since the product was a colorless, transparent or translucent, and substantially amorphous shaped-body having thermoplasticity and satisfactory storage-stability under indoor circumstances,

it can be arbitrarily reheated to a temperature of about 90°C to about 160°C to impart it free-flowing ability, then transformed or processed into a shaped-body with an appropriate form with or without using other substances having different functions. The product can be also used arbitrarily for preparing a paste containing trehalose by dissolving in a relatively-small amount of hot water, and the resulting paste can be used intact in an amorphous form or used as a powdered base after crystallization of trehalose.

#### Example B-1

##### Cotton-like shaped-body

To one part by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose, obtained by the method in Example 7, was adhered by homogeneously spraying 0.05 part by weight of a concentrated lemon-juice, dried, and fed to a cotton-candy machine and heated to melt at temperatures over about 100°C to obtain a cotton candy. Unlike conventional cotton-candy processed with sugar having the demerits of easily reducing its volume as the time goes by and having no property of being acidulated, the product is an acid-punched, lemon-flavored, cotton-candy containing trehalose which less deteriorates after processing.

#### Example B-2

##### Coated shaped-body

One hundred parts by weight of wheat flour, two parts by weight of yeast, five parts by weight of sugar, one part by weight of maltose, and 0.1 part by weight of yeast food were in a usual manner kneaded with water. The mixture was fermented at 26°C for two hours, then further aged for 30 min, followed by rounding with hands the resulting dough for bread. A

thermoplastic shaped-body of trehalose, obtained by the method in Example A-4, was partially inserted into the dough from its surface in an amount of about 2% to the dough, d.s.b. According to conventional manner, the dough was baked at about 180°C. The product is a unique and interesting bread having a melt-distorted shaped-body of trehalose on its surface, and is a high-quality bread having a satisfactory appearance and texture, as well as an adequate elasticity and mild sweetness.

#### Example B-3

##### Coated shaped-body

Sixty parts by weight of butter, 20 parts by weight of sugar, 20 parts by weight of maltose, and 10 parts by weight of a crystalline trehalose dihydrate powder were well kneaded, then mixed with 40 parts by weight of chicken egg to obtain a creamy product. To the product were added 140 parts by weight of soft flour, 10 parts by weight of corn starch, and three parts by weight of pullulan. The resulting dough for cookie was passed through a mum cap over a plain plate to form a flower-shaped product, followed by adhering over the product a thermoplastic shaped-body of trehalose, obtained by the method in Example A-5, in an amount of about one percent, d.s.b., to the dough, and baking the resulting product at about 170°C for 15 min. In the baked product having a satisfactory flavor, taste and mouth feel, the cookie dough and the unique melt-distorted shaped-body containing trehalose well adhered each other without separation.

#### Example B-4

##### Granular shaped-body

A mixture powder, consisting of 15 parts by weight of

a thermoplastic shaped-body of trehalose obtained by the method in Example A-2, two parts by weight of plain yogurt, and 10 parts by weight of anhydrous trehalose powder, was heated to about 100°C and fed to a biaxial extruder to produce a granular shaped-body containing trehalose. The product is a yogurt-flavored sweet shaped-body and can be arbitrarily used as a confectionery material for premixes, frozen deserts, cakes, etc., and as a therapeutic nutrient for intubation feedings; and can be incorporated into whipped margarine creams, spreads, cheese cakes, jellies, etc. to obtain a yogurt-flavored food product.

#### Example B-5

##### Trapezoidal shaped-body

Thirty parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose obtained by the method in Example A-3, one part by weight of  $\alpha$ -glucosyl-L-ascorbic acid, one part by weight of  $\alpha$ -glucosyl hesperidin, one part by weight of sodium sulfate, and one part by weight of aqueous alcohol dissolving an adequate amounts of a color and a flavor were heated at about 100°C and fed to a pressure-forming machine to obtain a trapezoidal shaped-body containing trehalose. The product, weighing about 10 g, is suitably used as a skin-beautifying and skin-whitening agents and used after sinking in a bath tab. Similarly as in bath use, the product can be arbitrarily used after dissolving in a face-washing water or cosmetic liquid.

#### Example B-6

##### Elliptic-spherical shaped-body

A mixture, consisting of 500 parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose obtained by the method



in Example A-2, 270 parts by weight of an egg yolk powder, 209 parts by weight of a skim milk powder, 4.4 parts by weight of sodium chloride, 1.85 parts by weight of potassium chloride, four parts by weight of magnesium sulfate, 0.01 part by weight of thiamine, 0.1 part by weight of sodium ascorbate, 0.6 part by weight of vitamin E acetate, and 0.04 part by weight of nicotinic acid amide, were heated to about 100°C and fed to a pressure-forming machine to obtain an elliptic-spherical shaped-body containing trehalose. The product, weighing about five grams, is satisfactorily used as a nutrient shaped-body by melting in the mouth as a therapeutic nutrient for sick persons and as a nutrient for healthy persons to maintain and promote their health.

#### Example B-7

##### Granular shaped-body

A mixture of 10 parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose, obtained by the method in Example A-1, and one part by weight of a sodium carbonate powder was heated to about 100°C and fed to a biaxial extruder to produce a granular shaped-body containing trehalose. The product can be widely used in a variety of uses as an easily handleable pH-controlling agent with less fear of causing scattering of the sodium carbonate powder.

#### Example B-8

##### Short-tubular shaped-body

A mixture of 100 parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose obtained by the method in Example A-2, 200 parts by weight of fish flour, 20 parts by weight of pregelatinized starch, three parts by weight of pullulan, and

10 parts by weight of water was heated to about 100°C and fed to an extruder to obtain a short-tubular shaped-body containing trehalose. The product was soaked in a solution of about 10% shellac in alcohol, then instantly taken out from the solution, and dried with hot air to obtain a short-tubular shaped-body containing trehalose. The product is a feed with lesser fear of spoiling water and can be satisfactorily used as a feed for breeding or enjoying fishes, shellfishes, and cruschymata, and crustaceans independently of freshwater or sea water.

#### Example B-9

##### Flowerpot

A mixture of 100 parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose obtained by the method in Example A-6, 15 parts by weight of glycerine, and 50 parts by weight of used-paper pulp was heated to about 150°C and fed to an injection molder to obtain a flowerpot. The resulting flowerpot was soaked in a melted wax and cooled to produce a flowerpot containing trehalose. Since the product is gradually degradable and biodegradable, it can be advantageously used as a flowerpot for transplanting plants therewith without damaging the plants' roots.

#### Example B-10

##### Short-rod shaped-body

A mixture of 60 parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose, obtained by the method in Example A-1, 30 parts by weight of a coral powder, and two parts by weight of corn steep liquor was heated to about 110°C and fed to an extruder to obtain a plant activator of short-rod shaped-body containing trehalose. The product is satisfactorily used as a

durable plant-activator because it needs no container, has easy handleability, and in use dissolves and disintegrates in an appropriate rate.

#### Example B-11

##### Golf tee

A mixture of 10 parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose, obtained by the method in Example A-4, and 0.5 part by weight of pullulan was heated to about 160°C and fed to an injection molder to form a golf tee which was then soaked in a solution of about 10% shellac in alcohol and dried to obtain the captioned product. After crashed into pieces by shot, the product is gradually disintegrated by rainwater and biodegraded. Thus, the product does not spoil the beauty and environment of golf course. In addition, adequately dispersed trehalose contained in the golf tee activates the growth of lawn in the golf course.

#### Example B-12

##### Film shaped-body

A mixture of 92 parts by weight of low-density polyethylene, eight parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose obtained by the method in Example A-3, 0.05 part by weight of calcium stearate, 0.5 part by weight of an enzyme-treated rutin, and 0.5 part by weight of a tea extract was heated to about 120°C and fed to a pressure forming machine to obtain a short-rod shaped-body. Thereafter, the shaped-body was heated to about 130°C and fed to an extruder as inflation technique to obtain a film shaped-body. The product can be arbitrarily used as a film for keeping the freshness of fresh plants and foods such as flowers, vegetables, fruits, meats, and

fishes.

### Example B-13

#### Rectangular-parallelepiped shaped-body

One hundred and fifty parts by weight of a thermoplastic shaped-body of trehalose, obtained by the method in Example A-7, was heated to about 100°C and mixed with 13 parts by weight of gelatine, which had been melted by heating in 18 parts by weight of water. The resulting mixture was mixed with adequate amounts of an *umami* seasoning, color, and flavor, then fed to an extruder to obtain a sheet shaped-body, followed by cutting into a rectangular-parallelepiped shaped-body. The product having adequate elasticity is a gummy candy with satisfactory flavor and taste.

#### [Effect of the Invention]

As described above, the thermoplastic shaped-body of trehalose according to the present invention is easily handleable because of its satisfactory thermoplasticity, moisture resistance, heat resistance, acid tolerance, alkaline tolerance, and storage stability. Using the thermoplasticity, the product has a characteristic of being repeatedly formed or molded.

In producing the thermoplastic shaped-body of trehalose, the processibility during its forming or molding can be advantageously improved by lowering the adhesion of trehalose solution.

By heating the thermoplastic shaped-body of trehalose to impart it free-flowing ability, it can be easily formed into shaped-bodies with appropriate shapes. In the case of forming, the thermoplastic shaped-body of trehalose can be arbitrarily

formed after mixing with functional substances and effective ingredients such as materials for food products, cosmetics, pharmaceuticals, agriculture, fishery, live stocks, and plastic-moldings.

The shaped-bodies thus obtained can be easily formed into products with appropriate shapes, improved their supplemental values because trehalose stabilizes relatively-unstable functional substances and effective ingredients. In addition, the shaped-bodies can be processed into gradually-disintegrable, biodegradable ones, meaning that they are the products that well harmonize with the earth.

Accordingly, the present invention greatly influences on the fields of food-, cosmetic-, pharmaceutical-, agriculture-, fishery-, live stock-, plastic-, and house hold-industries.

[Document Name]      Abstract

[Summary]

[Object]      The object of the present invention is to easily form a shaped-body with an appropriate shape.

[Construction]      The present invention solves the above object by providing a thermoplastic shaped-body of trehalose; a process for producing the thermoplastic shaped-body using a trehalose solution; a process for producing a shaped-body containing trehalose characterized in that it comprises the steps of heating the thermoplastic shaped-body of trehalose to impart it free-flowing ability, and forming the resultant into a shaped-body with an appropriate form; a method for lowering the adhesion of trehalose solution; and uses thereof.

[Selected Figure]      None